

PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 2003-173792

(43)Date of publication of application : 20.06.2003

(51)Int.Cl.

H01M 8/02

C22C 19/05

H01M 8/10

(21)Application number : 2001-371641

(71)Applicant : MITSUBISHI MATERIALS CORP

(22)Date of filing : 05.12.2001

(72)Inventor : KITA KOICHI

(54) CORROSION-RESISTANT Ni-GROUP ALLOY SEPARATOR BOARD FOR SOLID POLYMER FUEL CELL WITH ENOUGH STRENGTH TO ALLOW THINNING

(57)Abstract:

PROBLEM TO BE SOLVED: To provide a corrosion-resistant Ni-group alloy separator board for a solid polymer fuel cell with enough strength to allow thinning.

SOLUTION: The separator board for a solid polymer fuel cell made by piling, pressure-welding and assembling a plurality of single generating modules of a structure in which a separator board with a fuel gas flow path formed in contact with, and in a state of pinching, an anode on one side face of a solid polymer electrolyte membrane is arranged and another with an oxidizing gas flow path formed in contact with, and in a state pinching, a cathode on the other side face is composed of a Ni-group alloy with a composition containing in mass percent Cr by 40 to 48%, Mo and/or W by 0.1 to 2%, B by 0.01 to 1%, and the rest being Ni and inevitable impurities as well as with a constitution of metal boride distributed in dispersion on a substrate of austenite.

(19) 日本国特許庁 (J P)

(12) 公開特許公報 (A)

(11) 特許出願公開番号

特開2003-173792

(P2003-173792A)

(43) 公開日 平成15年6月20日 (2003.6.20)

(51) Int.Cl. ⁷	識別記号	F I	テマコード [*] (参考)
H 0 1 M 8/02		H 0 1 M 8/02	B 5 H 0 2 6
C 2 2 C 19/05		C 2 2 C 19/05	J
H 0 1 M 8/10		H 0 1 M 8/10	

(21) 出願番号	特願2001-371641(P2001-371641)	(71) 出願人	000006264 三菱マテリアル株式会社 東京都千代田区大手町1丁目5番1号
(22) 出願日	平成13年12月5日(2001.12.5)	(72) 発明者	喜多 晃一 埼玉県北本市下石戸下476 三菱マテリアル株式会社非鉄材料技術研究所内
		(74) 代理人	100076679 弁理士 富田 和夫 (外1名) Fターム(参考) 5H026 AA06 BB02 CC03 CX05 EE08 EE18 HH05

審査請求 未請求 請求項の数1 O L (全 6 頁)

(54) 【発明の名称】 薄肉化が可能な高強度を有する固体高分子形燃料電池の耐食性Ni基合金製セパレータ板材

(57) 【要約】

【課題】 薄肉化が可能な高強度を有する固体高分子形燃料電池の耐食性Ni基合金製セパレータ板材を提供する。

【解決手段】 固体高分子電解質膜の一方側面に、アノードを挟んで、これに当接して燃料ガス流路が形成されたセパレータ板材が、同他方側面には、カソードを挟んで、これに当接して酸化ガス流路が形成されたセパレータ板材が配置された構造の単一発電モジュールを複数個重ね合わせて圧接組み立てしてなる固体高分子形燃料電池の前記セパレータ板材を、質量%で、Cr: 4.0~4.8%、Moおよび/またはW: 0.1~2%、B: 0.01~1%、を含有し、残りがNiと不可避不純物からなる組成、並びにオーステナイトの素地に金属間化合物が分散分布した組織を有するNi基合金で構成する。

【特許請求の範囲】

【請求項1】 固体高分子電解質膜の一方側面に、アノードを挟んで、これに当接して燃料ガス流路が形成されたセパレータ板材が、同他方側面には、カソードを挟んで、これに当接して酸化ガス流路が形成されたセパレータ板材が配置された構造の単一発電モジュールを複数個重ね合わせて圧接組み立てしてなる固体高分子形燃料電池において、上記セパレータ板材を、質量%で、
 $Cr: 4.0 \sim 4.8\%$ 、
 Mo および/または $W: 0.1 \sim 2\%$ 、
 $B: 0.01 \sim 1\%$ 、
 を含有し、残りが Ni と不可避不純物からなる組成、並びにオーステナイトの素地に金属珪化物が分散分布した組織を有する Ni 基合金で構成したことを特徴とする薄肉化が可能な高強度を有する固体高分子形燃料電池の耐食性 Ni 基合金製セパレータ板材。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】 この発明は、高強度を有し、かつ耐食性にもすぐれ、したがって燃料電池の軽量化および小型化に不可欠の薄肉化を可能とする固体高分子形燃料電池（以下、単に燃料電池という）の耐食性 Ni 基合金製セパレータ板材に関するものである。

【0002】

【従来の技術】 従来、一般に上記燃料電池が、図1、2に示される通り、単セルと呼ばれる単一発電モジュールを複数個重ね合わせて圧接組み立てた構造をもち、かつ前記単セルが、固体高分子電解質膜の一方側面に、アノード（水素極）を挟んでセパレータ板材が当接され、また前記固体高分子電解質膜の他方側面には、カソード（酸素極または空気極）を挟んで、同じくセパレータ板材が当接され、さらに前記セパレータ板材における前記アノードとの当接面には燃料ガス流路、前記カソードとの当接面には酸化ガス流路が形成された構造をもつことはよく知られるところである。また、上記の燃料電池は、セパレータ板材のアノード側に形成された燃料ガス流路を通常約 $80^{\circ}C$ の水素ガスが流れ、同カソード側の酸化ガス流路を同じく約 $80^{\circ}C$ の燃料電池の反応生成物である水蒸気と大気との混合ガスが流れることによって発電機能を発揮することも知られている。さらに、上記の通り燃料電池のセパレータ板材のカソード当接面は、約 $80^{\circ}C$ の水蒸気と大気との混合ガスからなる酸性化ガス流に曝されるが、このカソード当接面に酸化膜が形成されるようになると、接面通電性が著しく低下して、電池機能低下の原因となることから、セパレータ板材の形成にはすぐれた耐食性を有する各種の材料が用いられており、かかる材料の中で、特にすぐれた耐食性を有する材料として、質量%（以下、%は質量%を示す）で、 $Cr: 4.0 \sim 4.8\%$ 、 Mo および/または $W: 0.1 \sim 2\%$ 、を含有し、残りが Ni と不可避不純物からなる組成

を有するオーステナイト単相組織の Ni 基合金が注目され、この Ni 基合金で形成された燃料電池のセパレータ板材が提案されている。

【0003】

【発明が解決しようとする課題】 一方、近年の燃料電池の軽量化および小型化に対する要求は強く、これに伴い、この構造部材であるセパレータ板材にも薄肉化が強く求められている。しかし、燃料電池は上記の通り半セルの相互間の接触抵抗を低くする、すなわち良好な接面通電性を確保する目的で、通常 $2 \sim 3 MPa$ 程度の圧力で締め付け圧接された状態で実用に供されているために、上記の耐食性にすぐれた従来 Ni 基合金製セパレータ板材の場合、これをあまり薄肉化すると、強度不足が原因で、塑性変形してしまい、十分満足な薄肉化を図ることができないのが現状である。

【0004】

【課題を解決するための手段】 そこで、本発明者等は、上述のような観点から、特に耐食性のすぐれた上記の従来 Ni 基合金製セパレータ板材に着目し、この強度向上を図るべく研究を行なった結果、前記従来 Ni 基合金製セパレータ板材を構成する Ni 基合金に合金成分として B （硼素）を含有させて、 $Cr: 4.0 \sim 4.8\%$ 、 Mo および/または $W: 0.1 \sim 2\%$ 、 $B: 0.01 \sim 1\%$ 、を含有し、残りが Ni と不可避不純物からなる組成をもつものとした Ni 基合金でセパレータ板材を構成すると、この結果の Ni 基合金製セパレータ板材は、これを構成する Ni 基合金がオーステナイトの素地に長さ方向の径で $0.5 \sim 10 \mu m$ 程度の寸法を有する金属珪化物が分散分布した組織を有することから、前記金属珪化物の分散分布によって強度が著しく向上し、実用に際して付加される単セルの締め付け圧接圧力下においてもすぐれた耐塑性変形性を示し、さらに前記金属珪化物は素地のオーステナイトに比して上記の酸化化ガス流路雰囲気中著しくすぐれた耐食性を発揮するので、すぐれた接面通電性が長期に亘って確保されるようになる、という研究結果を得たのである。

【0005】 この発明は、上記の研究結果に基づいてなされたものであって、固体高分子電解質膜の一方側面に、アノードを挟んで、これに当接して燃料ガス流路が形成されたセパレータ板材が、同他方側面には、カソードを挟んで、これに当接して酸化ガス流路が形成されたセパレータ板材が配置された構造の単一発電モジュールを複数個重ね合わせて圧接組み立てしてなる燃料電池において、前記セパレータ板材を、 $Cr: 4.0 \sim 4.8\%$ 、 Mo および/または $W: 0.1 \sim 2\%$ 、 $B: 0.01 \sim 1\%$ 、を含有し、残りが Ni と不可避不純物からなる組成、並びにオーステナイトの素地に金属珪化物が分散分布した組織を有する Ni 基合金で構成してなる、薄肉化が可能な高強度を有する燃料電池の耐食性 Ni 基合金製セパレータ板材に特徴を有するものである。

【0006】つぎに、この発明のセパレータ板材において、これを構成するNi基合金の組成を上記の通りに定めた理由を説明する。

(a) Cr

Cr成分には、Niと共に素地のオーステナイトを形成し、前記素地の耐食性を向上させるほか、耐食性のすぐれた金属珪化物を形成して強度を向上させ、かつ素地に分散分布することによってすぐれた接面通電性を確保する作用があるが、その含有量が40%未満では前記の作用に所望の向上効果が得られず、一方その含有量が48%を越えると加工性が急激に低下することになることから、その含有量を40~48%と定めた。

【0007】(b) Moおよび/またはW

これらの成分には、素地のオーステナイトに固溶して、これの強度を向上させると共に、上記の通り金属珪化物を形成して強度および接面通電性の向上に寄与する作用があるが、その含有量が0.1%未満では前記の作用に所望の向上効果が得られず、一方その含有量が2%を越えると加工性が急激に低下することになることから、その含有量を0.1~2%、望ましくは0.3~1.5%と定めた。

【0008】(c) B

B成分には、その僅かな一部が素地に固溶して、素地の耐食性向上に寄与するが、その大部分は上記の通り素地に長さ方向の径で0.5~10μmの寸法で分散分布する金属珪化物を形成して、強度を著しく向上させると共に、自身の持つすぐれた耐食性によって接面通電性の経時的低下を抑制し、長期に亘ってすぐれた発電機能を保持する作用があるが、その含有量が0.01%未満では金属珪化物の形成が不十分で前記の作用に所望の効果が得られず、一方その含有量が1%を越えると、金属珪化物の形成が多くなり過ぎて加工性が急激に低下することになることから、その含有量を0.01~1%、望ましくは0.1~0.9%と定めた。

【0009】

【発明の実施の形態】つぎに、この発明のセパレータ板材を実施例により具体的に説明する。原料として、いずれも純度が99.9%以上の高純度のNi材、Cr材、Mo材、およびW材、さらにNi-B母合金(B:17%含有)を用い、真空高周波誘導溶解装置で溶解し、それぞれ所定の成分組成をもった溶湯を調整し、これを水冷銅型に鋳造して厚さ:5mmの板状インゴットとし、この板状インゴットに1200℃の圧延開始温度での熱間圧延を繰り返し4回施して、厚さ:2mmの熱延板とし、ついで前記熱延板に1200℃に10分間保持後水冷の溶体化処理と1200℃に10分間保持後空冷の焼戻し処理を施した後、冷間加工にて厚さが1mmから

0.1mmづつ減少して0.1mmまでの10種類の板材を形成し、これらの冷延板に500℃に10分間保持後空冷の熱処理を施し、酸洗した状態で、50mm×50mmの板材を切り出し、この板材の中央部にプレス加工にて燃料ガス流路および酸化ガス流路に相当する幅:5mm×深さ:3mmの溝を5mm間隔で4本平行して形成することによりそれぞれ表1、2に示される成分組成をもったNi基合金で構成された本発明セパレータ板材1~27および従来セパレータ板材1~21を製造した。

【0010】なお、この結果得られた各種のセパレータ板材について、その組織を走査型電子顕微鏡(1000倍)を用いて観測したところ、本発明セパレータ板材1~27はいずれもオーステナイトの素地に長さ方向の径で0.5~10μmの寸法を有する金属珪化物が分散分布した組織を示し、また、従来セパレータ板材1~21はいずれもオーステナイト単相からなる組織を示した。

【0011】ついで、上記の各種セパレータ板材の強度を評価する目的で、上記の厚さの異なる10種類のセパレータ板材を、それぞれ平面寸法:150mm×150mm、厚さ:3mmのステンレス鋼板で上下方向から挟んで水平に設置した状態で、これに上方より燃料電池を構成する単セルの圧接組立で圧力に相当する4MPaの面圧を付加し、1分間保持後に取り出し、セパレータ板材におけるプレス成形溝に塑性変形が発生する板厚(塑性変形発生板厚)を測定した。この測定結果を表1、2に示した。

【0012】また、上記の各種セパレータ板材の耐食性を評価する目的で、上記の厚さ:1mmの各種セパレータ板材から30mm×30mmの試験片を切り出し、この試験片をセパレータ板材の酸化ガス流路が蝕される酸化性雰囲気と同等の雰囲気、すなわち80度の水蒸気飽和と水蒸気雰囲気中に3000時間放置の腐食試験を行い、腐食試験前後の接触電気抵抗値を測定した。なお、接触電気抵抗値は、上記試験片:2枚を1組とし、これを厚さ:0.3mmのカーボンペーパーを挟んで重ね合わせ、この重ね合わせた試験片を油圧プレスにて上下面から3MPaの圧力で加圧した状態で15Aの直流電流を流し、前記試験片相互間の電位差を測定し、この測定電位差から接触電気抵抗値を算出した。この結果も表1、2に示した。この場合、接触電気抵抗値の低い方がセパレータ板材の表面における腐食試験後の接面通電性がすぐれていることを示し、これは反対に腐食試験後の接触電気抵抗値が高くなればなるほど接面通電性が低いことを示すものである。

【表1】

種 別		Ni基合金の成分組成(質量%)					塑性変形 発生板厚 (mm)	接触電気 抵抗値 (mΩ)
		Cr	Mo	W	Bi	Ni+ 不純物		
本 発 明 セ パ レ ー タ 板 材	1	40.3	0.96	—	0.54	残	0.2	8
	2	44.5	1.02	—	0.48	残	0.2	10
	3	47.6	0.96	—	0.52	残	0.2	10
	4	40.4	—	0.86	0.49	残	0.2	8
	5	43.8	—	0.95	0.54	残	0.2	8
	6	47.8	—	1.04	0.48	残	0.2	8
	7	40.2	0.52	0.50	0.49	残	0.2	9
	8	44.0	0.68	0.37	0.50	残	0.2	9
	9	47.9	0.42	0.59	0.46	残	0.2	9
	10	44.1	0.13	—	0.47	残	0.3	12
	11	43.7	0.56	—	0.53	残	0.2	10
	12	43.5	1.49	—	0.52	残	0.2	9
	13	44.3	1.96	—	0.49	残	0.2	8
	14	43.8	—	0.11	0.54	残	0.3	10
	15	44.2	—	0.52	0.51	残	0.2	10
	16	44.0	—	1.47	0.48	残	0.2	10
	17	43.7	—	1.98	0.54	残	0.2	9
	18	44.0	0.07	0.06	0.53	残	0.2	10
	19	43.9	0.34	0.16	0.49	残	0.2	10
	20	43.6	0.62	0.77	0.51	残	0.2	9
	21	44.3	0.75	1.15	0.53	残	0.2	9
	22	44.1	0.98	—	0.013	残	0.3	12
	23	43.9	1.01	—	0.97	残	0.1	7
	24	44.4	—	0.97	0.012	残	0.2	11
	25	43.4	—	1.03	0.94	残	0.1	8
	26	43.6	0.34	0.68	0.015	残	0.3	12
	27	44.3	0.63	0.42	0.96	残	0.1	7

【0013】

30 【表2】

種 別		Ni基合金の成分組成(質量%)				塑性変形 発生増厚 (mm)	接触電気 抵抗値 (mΩ)
		Cr	Mo	W	B	Ni+ 不純物	
発 明 セ バ レ ー タ 材	1	40.4	1.06	—	—	残	0.6
	2	44.1	1.04	—	—	残	0.5
	3	47.8	0.94	—	—	残	0.5
	4	40.2	—	0.99	—	残	0.5
	5	44.1	—	1.03	—	残	0.5
	6	47.6	—	0.92	—	残	0.5
	7	40.3	0.53	0.48	—	残	0.6
	8	44.3	0.73	0.31	—	残	0.6
	9	47.7	0.38	0.62	—	残	0.5
	10	44.5	0.12	—	—	残	0.7
	11	43.8	0.49	—	—	残	0.6
	12	43.7	1.46	—	—	残	0.5
	13	44.4	1.94	—	—	残	0.5
	14	44.2	—	0.13	—	残	0.7
	15	44.0	—	0.56	—	残	0.6
	16	44.2	—	1.56	—	残	0.5
	17	44.1	—	1.93	—	残	0.5
	18	44.3	0.05	0.08	—	残	0.7
	19	43.7	0.38	0.13	—	残	0.6
	20	43.6	0.57	0.90	—	残	0.5
	21	44.1	0.71	1.24	—	残	0.5

【0014】

【発明の効果】表1、2に示される結果から、本発明セバレータ板材1～27は、いずれもオーステナイトの素地に分散分布する金属碳化物の存在によって薄肉化しても塑性変形が発生し難い高強度を有するばかりでなく、前記金属碳化物自体が耐食性にすぐれたものであることから、素地のオーステナイトが酸化して、この部分での接面通電性が低下しても、前記金属碳化物を通して良好な接面通電性を確保することができるのに対して、前記金属碳化物の形成がない従来セバレータ板材1～21においては、強度不足が原因で塑性変形し易く、満足の薄

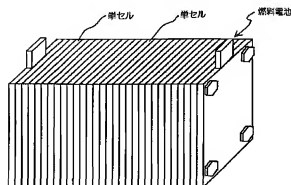
肉化を図ることができないばかりでなく、オーステナイト単相の酸化による全面的酸化膜の形成によって接面通電性が低下し、接触電気抵抗値の増大は避けられないことが明かである。上述のように、この発明のセバレータ板材は、薄肉化を可能とする高強度を有し、かつ接面通電性にもすぐれているので、燃料電池の軽量化および小型化に大いに寄与するものである。

【図面の簡単な説明】

【図1】燃料電池の概略斜視図である。

【図2】燃料電池の一部分解斜視図である。

【図1】



【図 2】

